

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 57-083563

(43)Date of publication of application : 25.05.1982

(51)Int.Cl. C09D 3/82
C08L 83/04

(21)Application number : 55-158114

(71)Applicant : FUJITSU LTD

(22)Date of filing : 12.11.1980

(72)Inventor : TAKEDA SHIRO
NAKAJIMA MINORU
KITAKOJI TOSHISUKE

(54) LIQUID RESIN COMPOSITION

(57)Abstract:

PURPOSE: The titled composition that is composed of a resin containing polysilsesquioxane and a silanol and a cellosolve ester solvent, thus being suitably used as an insulation resin, because of its giving of uniform coating films free from defects.

CONSTITUTION: The objective composition comprises (A) a resin composed of a mixture of a polysilsesquioxane of formula I [R1 is methyl, ethyl, phenyl; R2 is CmH2m+1 (m≥0; n>0)] with a silanol compound of formula II (R3 is R2; l>0) and (B) at least one of cellosolve ester solvents selected from methylcellosolve acetate, ethylcellosolve acetate and cellosolve acetate or a mixture thereof with at most 80wt% butyl alcohol.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑩ 日本国特許庁 (JP)
⑫ 公開特許公報 (A)

⑪ 特許出願公開
昭57—83563

⑬ Int. Cl.³
C 09 D 3/82
C 08 L 83/04

識別記号
庁内整理番号
6779—4 J
7019—4 J

⑭ 公開 昭和57年(1982)5月25日

発明の数 1
審査請求 有

(全 3 頁)

⑮ 樹脂液組成物

⑯ 特 願 昭55—158114
⑰ 出 願 昭55(1980)11月12日
⑱ 発 明 者 武田志郎
川崎市中原区上小田中1015番地
富士通株式会社内
⑲ 発 明 者 中島実

川崎市中原区上小田中1015番地
富士通株式会社内
⑳ 発 明 者 北小路俊右
川崎市中原区上小田中1015番地
富士通株式会社内
㉑ 出 願 人 富士通株式会社
川崎市中原区上小田中1015番地
㉒ 代 理 人 弁理士 青木朗 外 3 名

明 細 書

1. 発明の名称

樹脂液組成物

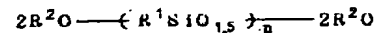
2. 特許請求の範囲

1. ポリシルセスキオキサンとシラノール系化合物との混合物からなる樹脂と、及びメチルセロソルブアセート、エチルセロソルブアセート及びブチルセロソルブアセートからなる群から選ばれる少なくとも1種のセロソルブエステル系溶剤又はこのセロソルブエステル系溶剤とこの溶剤に対して80重量部までのブチルアルコールとの混合溶剤とを含んでなる、コーティング用樹脂液組成物。

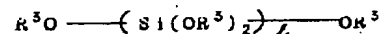
3. 発明の詳細な説明

本発明はコーティング用樹脂液組成物に關し、更に詳しく述べるならば半導体、バブルメモリなどの絶縁樹脂や保護樹脂として有用なポリシルセスキオキサン—シラノール系樹脂の樹脂液組成物に關する。

一般式：



(式中、 R^1 は一価の炭化水素基例えば $-CH_3$ 、 $-C_2H_5$ 、 $-\textcircled{C}$ などを表わし、 R^2 は C_mH_{2m+1} ($m \geq 0$) を表わし、 n は正の整数を表わす) で示されるポリシルセスキオキサンと一般式：



(式中、 R^3 は C_mH_{2m+1} ($m \geq 0$) を表わし、 L は正の整数を表わす) で示されるシラノール系化合物との混合物を半導体やバブルメモリの絶縁樹脂や保護樹脂として用いることは知られている。しかし、このような樹脂をコーティング用の樹脂液とすることに際して、従来は適当な溶剤組成を得ることができず、従って得られるコーティング膜においては下記の如き欠陥の生ずることが多かった。即ち、ピンホール、突起(析出物など)、はじきやへこみ(ピンホールになる)、放射状凹凸、流れむら、大きな表面粗さ、白化(溶剤蒸発の過程により温度低下が起き、空気中の水分が膜に付着

したとき又は混合樹脂系で相容性が悪いときなどに膜が白く濁る現象)などである。

従って、本発明の目的は、ポリシルセスキオキサンとシラノール系化合物との混合樹脂をコーティングするための樹脂液組成物に有効に用いることのできる溶剤組成を見出し、上記の如き欠点の生じないコーティング用樹脂液組成物を提供することにある。

本発明によれば、即ち、ポリシルセスキオキサンとシラノール系化合物との混合物からなる樹脂と、及びメチルセロソルブアセテート、エチルセロソルブアセテート及びブチルセロソルブアセテートからなる群から選ばれる少なくとも1種のセロソルブエステル系溶剤又はこのセロソルブエステル系溶剤とこの溶剤に対して80重量%までのブチルアルコールとの混合溶剤とを含んでなる、コーティング用樹脂液組成物が提供される。

ポリシルセスキオキサンとシラノール系化合物とは極性が異なり、完全な相溶系でないため、コーティング時にスピコートによって溶剤が蒸発

していく過程で相分離が起り易く、その結果コーティング膜に前述した如き欠陥が生ずることになる。しかるに、本発明に係る上記の如き溶剤を用いた樹脂液としてコーティングを行う場合にはかかる膜欠陥の発生は極めて有効に防止することができ、均一なコーティング膜を得ることができるということが見出されたのである。

ポリシルセスキオキサンは、分子量が小さい場合にはほとんど全ての有機溶剤に可溶であるが、分子量が大きい場合には低級アルコール以外の有機溶剤に可溶である。一方、シラノール系化合物はヘキサンなどの脂肪族炭化水素系溶剤やトルエンなどの芳香族炭化水素系溶剤の如き水素結合力の小さい溶剤に不溶である。しかるに、ポリシルセスキオキサンとシラノール系化合物とはその極性が同一でなく、その混合系において均一なコーティング膜を得るためには蒸発過程で樹脂液濃度に変化してもポリシルセスキオキサンとシラノール系化合物の両者がともに溶解状態を保持し得るような溶剤を用いることが必要となるのであって、

本発明に係る溶剤組成はかかる要請を十分に満足し得るものである。

即ち、本発明の樹脂液組成物によれば、膜欠陥のない、極めて均一なコーティング膜を得ることができるのである。

以下、例により本発明を更に説明する。

※実施例1～9及び比較例1～8

下記の表1に示す組成(重量%)の樹脂液を調製し、それぞれ4000r.p.m.、120秒の条件で基板の上にスピコートした。次いで、これを140℃で30分、次いで450℃で60分硬化を行った後、膜表面の状態を顕微鏡(300～1000倍)、肉眼、表面粗さ計などにより調べた。その結果を下記の表2に示す。尚、上記において用いた基板は直径2インチ、厚さ5000ÅのSiO₂付きSiウエハであった。

以下余白

表 1

試 料	実 施 例									比 較 例							
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	1	2	3	4	5	6	7	8
ポリシルセスキオキサン ⁽¹⁾	16.7	16.7	16.7	13.3	13.3	13.3	23.3	23.3	23.3	16.7	16.7	16.7	16.7	16.7	16.7	16.7	16.7
シラン系化合物 ⁽²⁾	16.7	16.7	16.7	20.0	20.0	20.0	10.0	10.0	10.0	16.7	16.7	16.7	16.7	16.7	16.7	16.7	16.7
メチルセロソルブ アセテート	66.6			60.0			50.6										
エチルセロソルブ アセテート		66.6			60.0			50.6									
ブチルセロソルブ アセテート			66.6			60.0			50.6						40	50	
シクロヘキサノン										66.6				50			
イソプロピル											66.6						
ジアセトンアルコール												66.6					
トルエン															10		
イソプロパノール																	40
ブタノール				6.6	6.6	6.6	16.1	16.1	16.1				66.6	16.6	16.6		
オクチルアルコール																16.6	
エタノール																	26.6

(1) ポリメチルフェニルシルセスキオキサン

 $\overline{M}_w \approx 4500$ (ポリステレン換算)

(2) ポリジエトキシヒドロキシシラン

 $\overline{M}_w \approx 1800$ (ポリステレン換算)

表 2

	実 施 例									比 較 例							
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	1	2	3	4	5	6	7	8
膜 厚 (μm)	0.9	0.6	0.4	1.0	0.7	0.4	0.7	0.6	0.5	0.8	0.3	0.5	0.7	0.9	0.8	0.4	~12
表面粗さ (μm)	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.1	0.1	0.3	<0.01	1.0	0.1	0.4
流れむら	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	有	有	有	なし	有	不明	有	なし
放射状凹凸	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	不明	なし	有
析 出 物	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	なし	不明	不明	不明	有	不明	不明	不明